

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

# PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 10-334927

(43)Date of publication of application : 18.12.1998

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

H01M 8/10

(21)Application number : 09-140729

(71)Applicant : OOWADA CARBON KOGYO KK

(22)Date of filing : 30.05.1997

(72)Inventor : SHINOZAKI MITSURU

ARAO AKIRA

KINUKAWA ISAO

YABUTA YUICHI

## (54) SEPARATOR FOR SOLID HIGH POLYMER FUEL CELL AND ITS MANUFACTURE

### (57)Abstract:

**PROBLEM TO BE SOLVED:** To provide a separator for a solid high polymer fuel cell possessing performance such as gas nonpermeability, conductivity, sulfuric acid resistance, required strength, and lightness at a low cost by forming the separator with carbon powder and a thermosetting resin into the prescribed shape, mainly by the resin molding method.

**SOLUTION:** Carbon powder such as natural graphite of 80-40 vol.% and a thermosetting resin such as a phenol resin of 20-60 vol.% are mixed, a solvent such as acetone is added, and they are kneaded into a flake shape and inserted into a die of the prescribed shape for press molding. A separator with the prescribed external shape and grooves on the surface and back face is formed, and mechanical machining such as boring and screw cutting is applied, as required, to obtain a final product. The separator preferably has an electrical specific resistance of  $200000 \mu \Omega \cdot \text{cm}$  or below and the practical lower limit of about  $5000 \mu \Omega \cdot \text{cm}$ , and the prescribed quantities of metal materials such as titanium, gold, and silver can be blended as required according to the conductivity and strength required.

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-334927

(43) 公開日 平成10年(1998)12月18日

(51) Int.Cl.<sup>8</sup>

識別記号

F I

H 0 1 M 8/02  
8/10

H 0 1 M 8/02  
8/10

B

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号 特願平9-140729

(22) 出願日 平成9年(1997)5月30日

(71) 出願人 390009645

大和田カーボン工業株式会社  
大阪府豊中市日出町2丁目1番16号

(72) 発明者 篠崎 充

大阪府堺市高倉台4-13-1

(72) 発明者 新生 明

大阪府南河内郡河南町さくら坂4-7-5

(72) 発明者 絹川 功

大阪府大阪市都島区網島町12-5-410

(72) 発明者 藪田 祐一

大阪府吹田市千里丘上34-415

(74) 代理人 弁理士 森本 義弘

(54) 【発明の名称】 固体高分子型燃料電池のセパレーターおよびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 ガス不透過性や導電性や耐硫酸性や曲げ強度などの要求性能を備えた固体高分子型燃料電池のセパレーターを、安価に提供できるようにする。

【解決手段】 炭素粉末とフェノール樹脂に代表される熱硬化性樹脂とを成分とするとともに、樹脂成形法を主たる形状形成手段として形成されている。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分とするとともに、樹脂成形法を主たる形状形成手段として形成されていることを特徴とする固体高分子型燃料電池のセパレーター。

【請求項2】 炭素粉末と熱硬化性樹脂との配合割合が、(炭素粉末) : (熱硬化性樹脂) = 80容量%以下 ~ 40容量%以上 : 20容量%以上 ~ 60容量%以下であることを特徴とする請求項1記載の固体高分子型燃料電池のセパレーター。

【請求項3】 電気比抵抗が  $200000 \mu\Omega \cdot \text{cm}$  以下であることを特徴とする請求項1または2記載の固体高分子型燃料電池のセパレーター。

【請求項4】 炭素粉末と熱硬化性樹脂とのほかに耐硫酸性の金属材料を含むことを特徴とする請求項1から3までのいずれか1項記載の固体高分子型燃料電池のセパレーター。

【請求項5】 炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分とする材料を用いて、樹脂成形法を主体として形状形成することを中心とする固体高分子型燃料電池のセパレーターの製造方法。

【請求項6】 炭素粉末と熱硬化性樹脂との配合割合を、(炭素粉末) : (熱硬化性樹脂) = 80容量%以下 ~ 40容量%以上 : 20容量%以上 ~ 60容量%以下とすることを特徴とする請求項5記載の固体高分子型燃料電池のセパレーターの製造方法。

【請求項7】 炭素粉末と熱硬化性樹脂とのほかに耐硫酸性の金属材料を含ませることを特徴とする請求項5または6記載の固体高分子型燃料電池のセパレーターの製造方法。

【請求項8】 請求項1から4までのいずれか1項記載のセパレーターを備えた固体高分子型燃料電池。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、固体高分子型燃料電池のセパレーターおよびその製造方法に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 燃料電池は、低公害で高い発電効率を持つ次世代の発電装置として期待されている。この燃料電池の種類としては、電解質の種類により、アルカリ型、リン酸型、熔融炭酸塩型、固体電解質型、固体高分子型などがある。この中で、固体高分子型燃料電池は、小規模発電や可搬用電源としての用途が期待されている。

【0003】 固体高分子型燃料電池のセパレーターに要求される主たる性能は、①水素、酸素、空気などのガスを透過しにくいこと、②電気比抵抗が低いこと、③硫酸性雰囲気において化学的に安定であること、④部品として必要な強度を有すること、⑤軽量であること、である。

【0004】 固体高分子型燃料電池は現在開発中である

が、そのセパレーターは、チタンや人造黒鉛などを材料とした板材が使用され、この板材が切削などの機械加工により形状加工されたものである。

## 【0005】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、チタン材は、重いために上記の軽量性の要求を満足しにくいという問題点がある。人造黒鉛は、ガス不透過性が良好でなく、この面でまだ課題の多い材料である。しかも、両者とも形状形成を機械加工で行うことからきわめて高価なものとなっており、固体高分子型燃料電池の実用化のネックとなっているという問題点がある。

【0006】 そこで本発明は、このような問題点を解決して、上述の各要求性能を備えた固体高分子型燃料電池のセパレーターを安価に提供できるようにすることを目的とする。

## 【0007】

【課題を解決するための手段】 この目的を達成するため本発明は、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分とするとともに、樹脂成形法を主たる形状形成手段として形成されているようにしたものである。

【0008】 このような構成であると、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分としているため、材料的に安価であり、また樹脂成形法を主たる形状形成手段として形成されているため安価に成形できる。しかも、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分として成形されているため、固体高分子型燃料電池のセパレーターに要求されるガス不透過性や低電気比抵抗や耐硫酸性や必要強度や軽量性などを実用的なレベルで備えたものとなる。

## 【0009】

【発明の実施の形態】 図1は固体高分子型燃料電池の基本的な構成例を示す。ここで1は燃料極、2は電解質板、3は酸化剤極である。4は本発明にもとづくセパレーターで、表裏両面にそれぞれ多数の溝5が形成されている。

【0010】 本発明のセパレーター4は、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを成分とするとともに、樹脂成形法を主たる形状形成手段として、その外形や表裏両面の溝5などが形成されている。

【0011】 ここで用いられる炭素粉末は、セパレーターの比電気抵抗を下げることに、すなわちその導電性に寄与するものであるが、公知の炭素質人造黒鉛粉末と黒鉛質人造黒鉛粉末と天然黒鉛粉末とのいずれでもよく、またはこれらの混合物を用いることもできる。特に、天然黒鉛粉末を用いると、セパレーターの電気比抵抗を大きく低減させることができる。

【0012】 熱硬化性樹脂は、セパレーターに所要の成形性とガス不透過性とを付与するためのものであるが、具体的には、公知のフェノール樹脂やポリイミド樹脂やエポキシ樹脂やフラン樹脂などを利用することができる。この内、特にフェノール樹脂は、所要の成形性やガ

ス不透過性を得やすく、また耐硫酸性にすぐれているため、好適に利用できる。このフェノール樹脂は、ノボラック系フェノール樹脂とレゾール系フェノール樹脂とのいずれでもよく、またこれらの混合物を用いることもできる。

【0013】炭素粉末と熱硬化性樹脂との配合割合は、  
(炭素粉末) : (熱硬化性樹脂) = 80容量%以下~40容量%以上 : 20容量%以上~60容量%以下であることが好ましい。熱硬化性樹脂の配合割合が20容量%未満であると、この樹脂の配合割合が少なくなり過ぎて、所要の成形性やガス不透過性や強度を得にくくなる。また熱硬化性樹脂の配合割合が60容量%を超えると、すなわち炭素粉末の配合割合が40容量%に満たなくなると、電気比抵抗が許容限度を超えて大きくなり過ぎる傾向にある。したがって、配合割合を、(炭素粉末) : (熱硬化性樹脂) = 70容量%以下~50容量%以上 : 30容量%以上~50容量%以下とするのがさらに好ましい。

【0014】本発明において、このセパレーターの電気比抵抗は、 $200000\mu\Omega\cdot\text{cm}$ 以下であることが好ましい。この値を超えると、セパレーターの電気比抵抗が大きくなり過ぎて、燃料電池の内部抵抗の増大を招く不都合が生じやすくなる。この電気比抵抗は、小さければ小さいほど好ましいが、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを上記の範囲の割合で配合した場合の実際的な下限は $5000\mu\Omega\cdot\text{cm}$ 程度となる。

【0015】本発明のセパレーターは、炭素粉末と熱硬化性樹脂とのほかに、耐硫酸性の金属材料を含むことができる。この金属材料はセパレーターの導電性や強度の向上、調整に役立つものである。ただし、セパレーターは燃料電池の内部の硫酸性雰囲気下で使用されるものであるため、この金属材料は上述のように耐硫酸性を有することが必要である。したがって、この金属材料は、具体的には、チタンや金や銀などの粉末や繊維などによって構成することができる。この金属材料は、必要とする導電度や強度に応じた適当な配合割合で含ませることができる。ただし、この配合割合が少な過ぎるとその効果を得にくくなり、また多過ぎると、導電性や強度の向上は図れても、コストや製品重量が増大して実用的でなくなる。

【0016】次に本発明のセパレーターの製造方法について説明する。まず、炭素粉末とフェノール樹脂などの熱硬化性樹脂とをたとえば上述の範囲の割合で配合し、必要ならさらに金属材料を配合して、混合物を得る。次に、この混合物にアセトンやメタノールなどの溶剤を加\*

$$\rho_{ABC} = (V_A \rho_A + V_B \rho_B + V_C \rho_C) / (V_A + V_B + V_C) \\ = (V_A \rho_A + V_B \rho_B + V_C \rho_C) / 100$$

であらわされ、充填率〔容積%〕は次式であらわされる。

【0023】(充填率) = ( (成形体の実測かさ比重)

\*えて混合し、熱ロール設備で熱間混練を行い、フレック状の混合物を得る。そして、このフレック状の混合物を粉碎して、成形原料とする。なお、上述のように熱ロール設備により熱間混練を行うと成分の均一化に有効であるが、常温、非加圧の状態でも混合を行ってもよい。

【0017】次に、得られた成形材料を用い、樹脂成形法にてセパレーターの形状形成を行う。樹脂成形法としては、プレス成形法、トランスファー成形法、射出成形法などを適用することができる。このような樹脂成形法によって、図1に示す矩形状のセパレーター4の外形のみならず、その表裏両面の多数の溝5をも一度に成形する。これによれば、原則として切削などの機械加工が不要であり、安価に成形することが可能である。なお、セパレーターの形状によっては、金型を用いた1回の樹脂成形だけでは所定の形状が得られない場合がある。その場合には、追加的に、得られた成形体に穴あけやねじ切りなどの機械加工を施して、最終製品とする。

【0018】代表的な製造方法の具体例は以下の通りである。すなわち、まず、固体レゾール型フェノール樹脂と天然黒鉛粉末と微量の離型剤とを所定の割合で配合し、それをメタノールなどの溶剤で適度な粘度に調整し、熱ロール設備で混練する。そして、得られたフレック状の混合物をミキサーで粉碎し、成形材料を得る。その後、標準的には、得られた成形材料をホットプレス機で樹脂成形する。このとき、金型を利用して $130\sim 150^\circ\text{C}$ で成形し、その後に $150\sim 180^\circ\text{C}$ で熱硬化性樹脂の硬化を促進させる。

【0019】

【実施例】次に実施例、比較例にもとづき本発明を具体的に説明する。なお、以下において、セパレーターの性能の評価は次の項目によって行った。

【0020】(1)かさ比重〔 $\text{g}/\text{cm}^3$ 〕

セパレーターの軽量性の目安になるとともに、下記の充填率の計算の元になるもので、成形体すなわち成形されたセパレーターを直接測定して値を得た。

【0021】(2)充填率〔容積%〕

ガス不透過性の目安となるものである。上記かさ比重を用いて、下記の式によって求めた。

【0022】すなわち、たとえば原料の種類が炭素粉末とフェノール樹脂と金属粉末との3種類である場合において、それぞれの原料種類をA、B、Cとする。そして配合時の容積比率〔%〕をそれぞれ $V_A$ 、 $V_B$ 、 $V_C$ であらわし、比重〔 $\text{g}/\text{cm}^3$ 〕を $\rho_A$ 、 $\rho_B$ 、 $\rho_C$ であらわす。すると成形体であるセパレーターの比重の理論値 $\rho_{ABC}$ 〔 $\text{g}/\text{cm}^3$ 〕は、

$$/ \rho_{ABC} ) \times 100$$

(3)電気比抵抗〔 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ 〕

定常直流電流供給器(タカバ(株)製)、デジタルマル

チメーター（タケダ理研（株）製）などを用いて、電圧降下法により測定した。

（４）曲げ強度  $[\text{kg}/\text{cm}^2]$

引張強さ試験機（（株）東京試験機製作所製）を用いて、３点曲げ法により測定した。

【００２４】（実施例１）炭素粉末として、粒径  $110\mu\text{m}$  以上かつ  $160\mu\text{m}$  以下の黒鉛質人造黒鉛粉末を使用した。また熱硬化性樹脂としてフェノール樹脂を使用した。炭素粉末とフェノール樹脂との配合割合は、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）＝６５容量％：３５容量％とした。

\*

\*【００２５】このような炭素粉末とフェノール樹脂とを混合し、次いでメタノールを添加して熱ロールにて混練し、その後に粉碎して成形原料とした。次に、この成形原料をプレス成形した。その条件は、温度  $140^\circ\text{C}$ 、圧力  $100\text{kg}/\text{cm}^2$ 、時間 ３０分とした。さらに成形後に、 $150^\circ\text{C} \times 16$  時間のキュアーを施して樹脂を硬化させた。

【００２６】このようにして得られたセパレーターの各種特性値を測り、表１に記載の通りの結果を得た。

【００２７】

【表１】

|       | 配 合 割 合<br>[容 量 %]                     | かさ比重<br>[ $\text{g}/\text{cm}^3$ ] | 充填率<br>[容 量 %] | 電気比抵抗<br>[ $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ ] | 曲げ強度<br>[ $\text{kg}/\text{cm}^2$ ] |
|-------|----------------------------------------|------------------------------------|----------------|------------------------------------------|-------------------------------------|
| 実施例 1 | 炭素粉末 65<br>フェノール樹脂 35                  | 1.88                               | 99.9           | 13700                                    | 448                                 |
| 実施例 2 | 炭素粉末 50<br>フェノール樹脂 50                  | 1.72                               | 99.0           | 47900                                    | 542                                 |
| 実施例 3 | 炭素粉末 60<br>フェノール樹脂 40                  | 1.85                               | 99.9           | 19600                                    | 431                                 |
| 実施例 4 | 炭素粉末 59<br>フェノール樹脂 40<br>還元銀粉末 1       | 1.92                               | 98.8           | 18000                                    | 476                                 |
| 実施例 5 | 炭素粉末 58<br>フェノール樹脂 40<br>還元銀粉末 2       | 1.99                               | 98.5           | 16800                                    | 485                                 |
| 実施例 6 | 炭素粉末 56<br>フェノール樹脂 40<br>還元銀粉末 4       | 2.16                               | 98.9           | 13400                                    | 491                                 |
| 実施例 7 | 炭素粉末 52<br>フェノール樹脂 40<br>還元銀粉末 8       | 2.47                               | 98.1           | 6800                                     | 501                                 |
| 実施例 8 | 炭素粉末 57.5<br>フェノール樹脂 40.0<br>還元銀粉末 2.5 | 1.99                               | 98.3           | 17700                                    | 511                                 |
| 実施例 9 | 炭素粉末 57.5<br>フェノール樹脂 40.0<br>還元銀粉末 2.5 | 1.96                               | 95.4           | 9700                                     | 399                                 |
| 比較例 1 | 炭素粉末 85<br>フェノール樹脂 15                  | 1.55                               | 71.7           | 10400                                    | 30                                  |
| 比較例 2 | 炭素粉末 35<br>フェノール樹脂 65                  | 1.63                               | 99.4           | 255000                                   | 640                                 |

【００２８】（実施例２）炭素粉末とフェノール樹脂との配合割合を、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）＝５０容量％：５０容量％とした。そして、それ以外は実施例１と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表１に記載の通りであった。

【００２９】（実施例３）炭素粉末とフェノール樹脂との配合割合を、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）＝６０容量％：４０容量％とした。そして、それ以外は実施例１と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表１に記載の通りであった。

【００３０】（実施例４）炭素粉末とフェノール樹脂とのほかに、耐硫酸性の金属材料として、還元銀粉末を配合した。その配合割合は、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）：（還元銀粉末）＝５９容量％：４０容量％：１容量％とした。そして、それ以外は実施例１と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表１に記載の通りであった。

【００３１】（実施例５～７）実施例４に比べ、還元銀粉末と炭素粉末との配合割合を表１に記載の通りに変更した。そして、それ以外は実施例４と同じとして、セパ

レーターを得た。その各種特性値は、表1に記載の通りであった。

【0032】（実施例8）耐硫酸性の金属材料として、ステンレス粉末（SUS316L、粒径10～45 $\mu$ m）を配合した。その配合割合を、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）：（ステンレス粉末）＝57.5容量%：40.0容量%：2.5容量%とした。そして、それ以外は実施例1と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表1に記載の通りであった。

【0033】（実施例9）耐硫酸性の金属材料として、10  
ステンレス繊維（SUS316、繊維径8 $\mu$ m、繊維長5mm、収束5000本）を配合した。その配合割合は、実施例8と同様に、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）：（ステンレス繊維）＝57.5容量%：40.0容量%：2.5容量%とした。そして、それ以外は実施例8と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表1に記載の通りであった。

【0034】（比較例1）炭素粉末とフェノール樹脂との配合割合を、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）＝85容量%：15容量%とした。そして、それ以外は実施20  
例1と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表1に記載の通りであった。

【0035】（比較例2）炭素粉末とフェノール樹脂との配合割合を、（炭素粉末）：（フェノール樹脂）＝35容量%：65容量%とした。そして、それ以外は実施例1と同じとして、セパレーターを得た。その各種特性値は、表1に記載の通りであった。

【0036】以上において、実施例1～9のセパレーターは、いずれも樹脂成形法によって成形でき、したがって安価に製造できるものであった。特に実施例1～3の30  
セパレーターは、炭素粉末とフェノール樹脂とを配合したものであったが、その配合割合が好ましい範囲であったため、いずれも充填率が高く、所要のガス不透過性を有しているものであった。また材料的にも安価であった。しかも、かさ比重が小さく、軽量に構成されたものであった。また電気比抵抗が十分に小さかった。しかも曲げ強度も実用上十分な程度を有するものであった。このため、燃料電池のセパレーターとして満足な特性を有するものであった。

【0037】実施例4～7のセパレーターは、実施例3 40

のものに金属材料としての還元銀粉末を加え、その添加量すなわち配合割合を変化させたものであったが、いずれも燃料電池のセパレーターとして満足な特性を有するものであった。特に、還元銀粉末の配合割合が増大するにつれて電気比抵抗が減少し、導電性が向上した。また還元銀粉末の配合割合が増大するにつれて曲げ強度も向上した。

【0038】実施例8および9のセパレーターは金属材料としてステンレス粉末およびステンレス繊維が配合されたものであったが、同様に燃料電池のセパレーターとして満足な特性を有するものであった。これらステンレス粉末およびステンレス繊維の配合割合はいずれも2.5容積%であったが、電気比抵抗はステンレス繊維を配合した実施例9の方が格段に改善され、また曲げ強度はステンレス粉末を配合した実施例8の方がすぐれたものであった。

【0039】これに対し、比較例1は、炭素粉末とフェノール樹脂とを配合したものであったが、フェノール樹脂の配合割合が極端に低かったため、それに対応して充填率および曲げ強度が低下した。

【0040】また比較例2は、反対にフェノール樹脂の配合割合が高かったため、それに対応して曲げ強度が格段に向上したものの、電気比抵抗が増大した。

【0041】

【発明の効果】以上のように本発明によると、炭素粉末と熱硬化性樹脂とを主成分としたため、材料的に安価であり、また樹脂成形法を主たる形状形成手段として形成されているため安価に成形でき、しかも炭素粉末と熱硬化性樹脂とを主成分として形成されているため、固体高分子型燃料電池のセパレーターに要求されるガス不透過性や低電気比抵抗や耐硫酸性や必要強度や軽量性などを実用的なレベルで備えたものとすることができる。

【図面の簡単な説明】

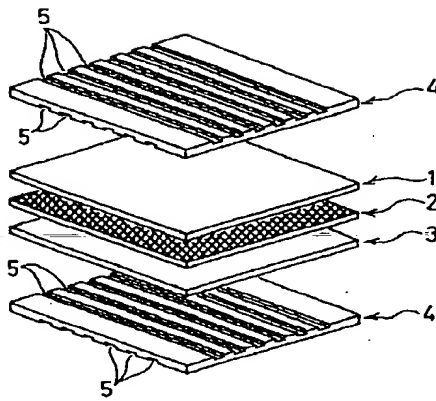
【図1】本発明の実施の形態のセパレーターを用いた高分子型燃料電池の基本的な構成例を示す分解斜視図である。

【符号の説明】

4 セパレーター

5 溝

【図1】



4…セパレーター  
5…溝